

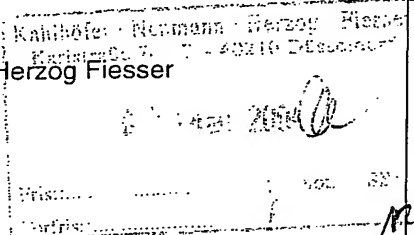
VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

PCT

An:

Herzog, Martin
Kahlhöfer Neumann Herzog Fiesser
Karlstrasse 76
D - 40210 Düsseldorf
ALLEMAGNE



MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNGSBERICHTS
(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum
(Tag/Monat/Jahr) 05.05.2004

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts
D80266PC

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 03/00407

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)
16.01.2003

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
17.01.2002

Anmelder
STOCKHAUSEN GMBH & CO. KG et al

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.
4. **ERINNERUNG**

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Der Anmelder wird auf Artikel 33(5) hingewiesen, in welchem erklärt wird, daß die Kriterien für Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit, die im Artikel 33(2) bis (4) beschrieben werden, nur für die internationale vorläufige Prüfung Bedeutung haben, und daß "jeder Vertragsstaat (...) für die Entscheidung über die Patentfähigkeit der beanspruchten Erfindung in diesem Staat zusätzliche oder abweichende Merkmale aufstellen" kann (siehe auch Artikel 27(5)). Solche zusätzlichen Merkmale können z.B. Ausnahmen von der Patentierbarkeit, Erfordernisse für die Offenbarung der Erfindung sowie Klarheit und Stützung der Ansprüche betreffen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde



Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2
NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas
Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl
Fax: +31 70 340 - 3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Lafitte-de Jong, S

Tel. +31 70 340-4827



Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT/EP2003/000407



PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference D80266PC	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/000407	International filing date (day/month/year) 16 January 2003 (16.01.2003)	Priority date (day/month/year) 17 January 2002 (17.01.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 51/25		
Applicant STOCKHAUSEN GMBH & CO. KG		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>6</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 13 August 2003 (13.08.2003)	Date of completion of this report 05 May 2004 (05.05.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/000407

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
 pages 1-52, as originally filed
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of
- ☒ the claims:
 pages, as originally filed
 pages, as amended (together with any statement under Article 19
 pages, filed with the demand
 pages 1-15, filed with the letter of 11/02/2004
- ☐ the drawings:
 pages, as originally filed
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages, as originally filed
 pages, filed with the demand
 pages, filed with the letter of

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages
- ☐ the claims, Nos.
- ☐ the drawings, sheets/fig

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/00407

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

1). Reference is made to the following documents:

D1: US-A-4738943

D2: US-A-4720474

D3: US-A-4310704

D4: EP-A-145467

2). Novelty

D1 (see examples I and XIV to XVI; and column 6, lines 35 to 54) discloses a method for oxidising 1-hexene to produce 2-hexanone, in which method 1-hexene, oxygen, $\text{Pd}(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2$ and copper(II) salts are brought into contact with each other in a liquid phase based on water and acetonitrile.

D2 also discloses the oxidation of 1-hexene to produce 2-hexanone in a liquid phase based on water and acetonitrile in the presence of $\text{Pd}(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2$.

D3 (see examples 1 and 21 to 28) discloses a method for oxidising olefins to produce ketones, in which method olefins, aqueous hydrogen peroxide and $\text{Pd}(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2$ are brought into contact with each other

in ethyl acetate as solvent. The liquid phase in this reaction therefore consists of water and ethyl acetate.

Documents D1 to D3 do not mention the additional use of a bidentate ligand XNY or the use of a solvent containing polyethylene glycol ether. The subject matter of claims 1 to 4, 14 and 15, and that of the dependent claims, is thus novel over D1 to D3.

D4 discloses a method for producing α,β -unsaturated carboxylic acids from olefins using a supported Pd-containing catalyst. Acetone is obtained as a by-product in the production of acrylic acid from propylene.

Inventive step

The present invention is considered to address the problem of developing a method for oxidising unsaturated hydrocarbons in which allylic and vinylic oxidation products can be obtained.

It was not to be expected from prior art teaching that acetone and acrylic acid could be selectively produced from the Pd-catalysed oxidation of propylene in the presence of the ligands RCO_2^- and XNY, or in the presence of the ligand RCO_2^- and a liquid phase based on a mixture of protic and aprotic polar solvents. The subject matter of claims 1 to 4, 14 and 15, and that of the dependent claims, thus involves an inventive step.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 05 MAY 2004

WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts D80266PC	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Überreichung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/00407	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 16.01.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 17.01.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C51/25		
Anmelder STOCKHAUSEN GMBH & CO. KG et al		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 6 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

I	<input checked="" type="checkbox"/>	Grundlage des Bescheids
II	<input type="checkbox"/>	Priorität
III	<input type="checkbox"/>	Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
IV	<input type="checkbox"/>	Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
V	<input checked="" type="checkbox"/>	Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
VI	<input type="checkbox"/>	Bestimmte angeführte Unterlagen
VII	<input type="checkbox"/>	Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
VIII	<input type="checkbox"/>	Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 13.08.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 05.05.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter Wright, M Tel. +31 70 340-3124 

1. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-52 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-15 eingegangen am 12.02.2004 mit Schreiben vom 11.02.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-15
Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-15
Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-15
Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1). Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: US-A-4738943

D2: US-A-4720474

D3: US-A-4310704

D4: EP-A-145467.

2). Neuheit.

D1 (siehe Beispiele I und XIV-XVI; Spalte 6, Zeilen 35-54) offenbart ein Verfahren zur Oxidation von 1-Hexen zu 2-Hexanon, wobei 1-Hexen, Sauerstoff, $\text{Pd}(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2$ und Kupfer(II) Salze in einer flüssigen Phase basierend auf Wasser und Acetonitril miteinander in Kontakt gebracht werden.

Die Oxidation von 1-Hexen zu 2-Hexanon in einer flüssigen Phase basierend auf Wasser und Acetonitril in Gegenwart von $\text{Pd}(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2$ wird auch durch D2 offenbart.

D3 (siehe Beispiele 1 und 21-28) offenbart ein Verfahren zur Oxidation von Olefinen zu Ketonen, wobei Olefine, wässriges Wasserstoffperoxid, und $\text{Pd}(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2$ in Äthylacetat als Lösungsmittel miteinander in Kontakt gebracht werden. Die flüssige Phase bei dieser Reaktion besteht daher aus Wasser und Äthylacetat.

Die zusätzliche Verwendung eines zweizähligen Liganden X \cap Y oder die Verwendung eines Polyethylenglykolether enthaltenden Lösungsmittels wird nicht in D1-D3 erwähnt. Der Gegenstand der Ansprüche 1-4, 14 und 15, sowie derjenige der abhängigen Ansprüche, ist somit neu gegenüber D1-D3.

D4 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von α,β -ungesättigten Carbonsäuren aus Olefinen unter Verwendung eines geträgten Pd enthaltenden Katalysators. Bei der Herstellung von Acrylsäure aus Propylen wird Aceton als Nebenprodukt erhält.

Erfinderische Tätigkeit.

Die zu lösende Aufgabe der vorliegenden Erfindung wird als die Bereitstellung eines Verfahrens zur Oxidation von ungesättigten Kohlenwasserstoffen angesehen, bei welchem allylische sowie vinylische Oxidationsprodukte erhalten werden können.

Aus der Lehre des Standes der Technik war nicht zu erwarten, daß bei der Pd-katalysierten Oxidation von Propylen in Gegenwart der Liganden RCO_2^- und XNY , oder in Gegenwart des Liganden RCO_2^- und einer flüssigen Phase basierend auf einer Mischung von protischen mit aprotischen polaren Lösungsmitteln, Aceton bzw. Acrylsäure selektiv hergestellt werden können. Der Gegenstand der Ansprüche 1-4, 14 und 15 sowie derjenige der abhängigen Ansprüche beruht daher auf einer erfinderischen Tätigkeit.

Stockhausen GmbH & Co. KG.

11. Februar 2004
D80266PC HZ/HV

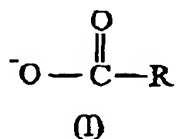
GEÄNDERTE PATENTANSPRÜCHE

(ohne Kenntlichmachung der Änderungen gegenüber den ursprünglich eingereichten Ansprüchen)

5

1. Ein Verfahren zur Oxidation ungesättigter Kohlenwasserstoffe, wobei ein ungesättigter Kohlenwasserstoff, ein sauerstoffhaltiges Oxidationsmittel, ein Palladiumkomplex als Katalysator umfassend einen Liganden der Formel (I)

10



15

worin R ein gesättigter, halogenerter Alkylrest mit 1 bis 20 C-Atomen ist, wobei der Palladiumkomplex neben dem Liganden der Formel (I) einen organischen Liganden (X/Y) umfasst, welcher mindestens zwei Atome X und Y der III., V. oder VI. Hauptgruppe des Periodensystems aufweist, wobei dieser Ligand über mindestens eines dieser beiden Atome X und Y an Palladium koordiniert werden kann und wobei mindestens eines dieser Atome Bestandteil eines heterocyclischen, aromatischen Ringsystems ist und gegebenenfalls Hilfsstoffe,

20

in einer flüssigen Phase basierend auf

- (α1) 10 bis 100 Gew.-% eines protischen, polaren Lösungsmittels sowie
(α2) 0 bis 90 Gew.-% eines aprotischen, polaren Lösungsmittels, wobei die
Summe der Komponenten (α1) und (α2) 100 Gew.-% beträgt,

25

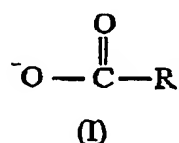
bei einer Temperatur in einem Bereich von 30 bis 300°C und einem Druck in einem Bereich von 1 bis 200 bar miteinander in Kontakt gebracht werden,

Stockhausen GmbH & Co. KG.

11. Februar 2004
D80266PC HZ/HV

so dass eine flüssige Phase beinhaltend sauerstoffhaltige Kohlenwasserstoffe erhalten wird.

2. Ein Verfahren zur Oxidation ungesättigter Kohlenwasserstoffe, wobei ein ungesättigter Kohlenwasserstoff, ein sauerstoffhaltiges Oxidationsmittel, ein Palladiumkomplex als Katalysator umfassend einen Liganden der Formel (I)



worin R ein gesättigter, halogenerter Alkylrest mit 1 bis 20 C-Atomen ist, und gegebenenfalls Hilfsstoffe

in einer flüssigen Phase basierend auf

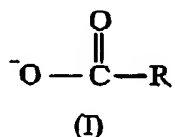
- (α1) 40 bis 90 Gew.-% eines protischen, polaren Lösungsmittels sowie
(α2) 10 bis 60 Gew.-% eines aprotischen, polaren Lösungsmittels ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Polyethylenglykoldialkylethern, Polyethylenglykoldivinylethern der Polyethylenglykolvinylalkylethern, wobei die Summe der Komponenten (α1) und (α2) 100 Gew.-% beträgt,

bei einer Temperatur in einem Bereich von 30 bis 300°C und einem Druck in einem Bereich von 1 bis 200 bar miteinander in Kontakt gebracht werden, so dass eine flüssige Phase beinhaltend sauerstoffhaltige Kohlenwasserstoffe erhalten wird.

Stockhausen GmbH & Co. KG.

11. Februar 2004
D80266PC HZ/HV

3. Ein Verfahren zur Oxidation ungesättigter Kohlenwasserstoffe, wobei ein ungesättigter Kohlenwasserstoff, ein sauerstoffhaltiges Oxidationsmittel, ein Palladiumkomplex als Katalysator umfassend einen Liganden der Formel (I)



worin R ein gesättigter, halogenerter Alkylrest mit 1 bis 20 C-Atomen ist, und gegebenenfalls Hilfsstoffe,

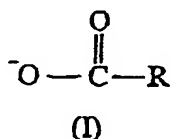
10 in einer flüssigen Phase basierend auf

(α1) einem protischen, polaren Lösungsmittel sowie

(α2) einem aprotischen, polaren Lösungsmittel, wobei das Gewichtsverhältnis des protischen zum aprotischen Lösungsmittel in einem Bereich von 100.000 : 1 bis 1 : 10 liegt,

15 bei einer Temperatur in einem Bereich von 30 bis 300°C und einem Druck in einem Bereich von 1 bis 200 bar miteinander in Kontakt gebracht werden, so dass eine flüssige Phase beinhaltend sauerstoffhaltige Kohlenwasserstoffe erhalten wird, wobei das protische, polare Lösungsmittel nicht Wasser und das aprotische, polare Lösungsmittel nicht Diglyme ist.

- 20 4. Ein Verfahren zur Oxidation ungesättigter Kohlenwasserstoffe, wobei ein ungesättigter Kohlenwasserstoff, ein sauerstoffhaltiges Oxidationsmittel, ein Palladiumkomplex als Katalysator umfassend einen Liganden der Formel (I)



Stockhausen GmbH & Co. KG.

11. Februar 2004
D80266PC HZ/HV

worin R ein gesättigter, halogener Alkylrest mit 1 bis 20 C-Atomen Atomen ist, und gegebenenfalls Hilfsstoffe,

- 5 in einer flüssigen Phase basierend auf
(a1) Wasser sowie
(a2) Diglyme, wobei das Gewichtsverhältnis des Wassers zum Diglyme in einem Bereich von 100.000 : 1 bis 1 : 10 liegt,
- 10 bei einer Temperatur in einem Bereich von 30 bis 300°C und einem Druck in einem Bereich von 1 bis 200 bar miteinander in Kontakt gebracht werden, so dass eine flüssige Phase beinhalten sauerstoffhaltige Kohlenwasserstoffe erhalten wird.
- 15 5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Rest R ein Trifluormethylrest ist.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das sauerstoffhaltige Oxidationsmittel ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend
20 aus O₂, H₂O₂ und N₂O.
7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die flüssige Phase eine Mischung aus Wasser und Diglyme ist.
- 25 8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der ungesättigte Kohlenwasserstoff Propylen ist.

Stockhausen GmbH & Co. KG.

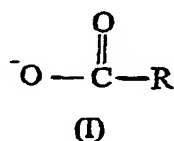
11. Februar 2004
D80266PC HZ/HV

9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Palladiumkomplex, bevor er die Oxidation des ungesättigten Kohlenwasserstoffes katalysiert, zunächst durch Reduktion aktiviert wird.
- 5 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 9, wobei der Palladiumkomplex neben dem Liganden der Formel (I) einen organischen Liganden (X \cap Y) umfasst, welcher mindestens zwei Atome X und Y der III., V. oder VI. Hauptgruppe des Periodensystems aufweist, wobei dieser Ligand über mindestens eines dieser beiden Atome X und Y an Palladium koordiniert
- 10 werden kann und wobei mindestens eines dieser Atome Bestandteil eines heterocyclischen, aromatischen Ringsystems ist.
11. Verfahren nach Anspruch 1 oder 10, wobei der organische Ligand (X \cap Y) über die beiden Atome X und Y als zweizähniger Ligand an Palladium
- 15 koordiniert werden kann.
12. Verfahren nach Anspruch 1 oder 11, wobei der organische Ligand (X \cap Y) p-Bathophen-sulfonat oder 2,2'-Bipyridyl ist.
- 20 13. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 12, wobei als Hilfsstoff Essigsäure oder ein Salz der Essigsäure eingesetzt wird.
14. Verwendung der Essigsäure oder eines Salzes der Essigsäure als Hilfsstoff in einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 13
- 25 (δ1) zur Erhöhung des katalytischen Nutzwertes des Palladiumkomplexes bei der Oxidation der ungesättigten Kohlenwasserstoffe, oder
(δ2) zur Erhöhung der Selektivität der Oxidation der ungesättigten Kohlenwasserstoffe.

Stoichmussen GmbH & Co. KG.

11. Februar 2004
D80266PC HZ/HV

15. Ein Verfahren zur Herstellung wasserlöslicher oder wasserabsorbierender Polymere, wobei in einer flüssigen Phase, erhalten durch ein Verfahren zur Oxidation von Propylen, wobei Propylen, ein sauerstoffhaltiges Oxidationsmittel, ein Palladiumkomplex als Katalysator umfassend einen
- 5 Liganden der Formel (I)



10 worin R ein gesättigter, halogenerter Alkylrest mit 1 bis 20 C-Atomen Atomen ist,

und gegebenenfalls Hilfsstoffe in einer flüssigen Phase basierend auf

(α1) 10 bis 100 Gew.-% eines protischen, polaren Lösungsmittels sowie

15 (α2) 0 bis 90 Gew.-% eines aprotischen, polaren Lösungsmittels, wobei die Summe der Komponenten (α1) und (α2) 100 Gew.-% beträgt,

bei einer Temperatur in einem Bereich von 30 bis 300°C und einem Druck in einem Bereich von 1 bis 200 bar miteinander in Kontakt gebracht werden, oder durch ein Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, die als

20 sauerstoffhaltiger Kohlenwasserstoff enthaltene Acrylsäure polymerisiert wird und das so erhaltene wasserlösliche oder wasserabsorbierende Polymer anschließend gegebenenfalls getrocknet und zerkleinert wird.